



Open Archive Toulouse Archive Ouverte (OATAO)

OATAO is an open access repository that collects the work of Toulouse researchers and makes it freely available over the web where possible.

This is an author-deposited version published in: <http://oatao.univ-toulouse.fr/>
Eprints ID : 2489

To link to this article :

URL : <http://dx.doi.org/10.1051/mattech:2008008>

To cite this version : Sallé, C. and Maître, A. and Baumard, J.F. and Rabinovitch, Y. and Bogicevic, C. and Karolak, F. and Dammak, H. and Estournès, Claude (2007) [*Étude du frittage non-conventionnel de céramiques de type YAG:Nd en présence d'ajout de silice.*](#) Matériaux & Techniques, vol. 95 (n° 4 -5). pp. 241-249. ISSN 0032-6895

Any correspondence concerning this service should be sent to the repository administrator: staff-oatao@inp-toulouse.fr

Étude du frittage non-conventionnel de céramiques de type YAG:Nd en présence d'ajout de silice

C. Sallé¹, A. Maître¹, J.F. Baumard¹, Y. Rabinovitch², C. Bogicevic³,
F. Karolak³, H. Dammak³ et C. Estournès⁴

¹ Université de Limoges, UMR CNRS 6638, Laboratoire Sciences des Procédés Céramiques et de Traitements de Surface, 123 avenue Albert Thomas, 87060 Limoges Cedex, France

² CILAS, Bâtiment ESTER, BP. 76923, 87069 Limoges Cedex, France

³ École Centrale de Paris, UMR CNRS 8580, Laboratoire Structure, Propriétés et Modélisation des Solides, Grande Voie des Vignes, 92295 Chatenay-Malabry Cedex, France

⁴ Université Paul Sabatier de Toulouse, UMR CNRS 5085, Laboratoire CIRIMAT, 118 route de Narbonne, 31062 Toulouse Cedex 04, France

Mots-clés :

YAG ; frittage SPS ; post-traitement HIP ; croissance granulaire ; transparence

Résumé – L'objectif de cette étude était de cerner l'influence du procédé de frittage non conventionnel employé pour la mise en forme des pièces (frittage SPS ou post-frittage HIP) sur l'activation des processus densifiants. Il s'avère qu'un traitement SPS des poudres initiales permet d'abaisser la température de début de frittage et conduit dans certaines conditions à des pièces translucides ou transparentes. L'influence de la silice, introduit comme ajout de frittage, et du néodyme, introduit comme dopant, est également discutée dans ce travail.

Le post-frittage HIP, quant à lui, permet l'élimination de la porosité résiduelle dans les échantillons, ce qui conduit à la transparence des pièces réalisées.

Key words:

YAG ; SPS ; post-HIP treatment ; grain growth ; transparency

Abstract – Study of unconventional sintering of Nd:YAG based ceramics in presence of silica. The purpose of the present work is to determine the influence of the non-conventional sintering processes (e.g. SPS technique or HIP post-treatment) used to shape YAG-based ceramics on the densification activation. It proves that a SPS treatment of the initial powders allows decreasing the temperature of the starting of the densification and leads to translucent or transparent pieces. The influence of silica, introduced as a sintering aid, and neodymium, introduced as doping agent, is also discussed in this study. Therefore, the HIP post-treatment permits the removing of the residual porosity in the samples which favours the transparency of the final ceramic pieces.

Ce travail a pour but d'étudier le frittage réactif non-conventionnel du YAG (Yttrium Aluminum Garnet) dopé ou non par le néodyme en comparant l'apport de différents procédés tels que le SPS (Spark Plasma Sintering) ou le HIP (Hot Isostatic Pressing).

Si le procédé de fabrication des céramiques transparentes commence à être bien maîtrisé, la compréhension des mécanismes de frittage reste à explorer. En particulier, nous chercherons à mieux définir l'effet de la silice sur le frittage SPS et HIP des céramiques de type YAG. Dans ce contexte, le rôle de certains paramètres opératoires par exemple liés au traitement thermique (mode de chauffage, atmosphère de frittage) ou aux propriétés physico-chimiques des matières premières a été évalué.

De nombreux travaux ont été réalisés sur l'élaboration de YAG:Nd. Ces études montrent qu'il est possible de produire des céramiques transparentes à base de YAG avec des propriétés optiques comparables à celles des monocristaux. Ces bonnes propriétés sont obtenues lors d'un traitement thermique des pièces sous vide et à très hautes températures [1, 2]. Cependant, le frittage réactif et naturel du YAG présente quelques limites : températures de frittage élevées, temps de maintien importants [3–5]. Ces conditions sévères de traitement sont étroitement liées à la nécessité d'obtenir un matériau dense, sans phases secondaires (ou en très faibles proportions) avec un grossissement de grain contrôlé.

Texte reçu le 29 septembre 2007
accepté le 20 juillet 2007

En effet, la croissance des grains n'est bénéfique (pour l'obtention de la transparence) que parce qu'elle s'accompagne d'une diminution de la densité de joints de grain. Au contraire, le grossissement de grains exagéré, souvent mis en évidence pour les céramiques de type YAG en l'absence d'ajout de silice [6], favorise la croissance des pores et la formation d'une porosité intragranulaire, préjudiciable aux propriétés optiques.

Parmi les voies possibles de frittage des céramiques de type YAG, le procédé SPS semble occuper une place prometteuse. En effet, ce procédé peut favoriser la cinétique de densification et limiter ainsi le temps disponible pour le grossissement de grains. Ainsi, dans le cas du frittage SPS de poudres de YAG, des échantillons denses ont pu être élaborés à des températures inférieures à $0,3 T_F$ [7–9]. De plus, Chaim et al. [10] ont montré que le frittage flash de la poudre de YAG pouvait conduire à des céramiques transparentes après seulement trois minutes de traitement à $1400\text{ }^\circ\text{C}$ sous une charge maintenue constante de 100 MPa.

Le frittage sous charge isostatique (HIP) est également une méthode non conventionnelle de frittage des céramiques transparentes. Ce procédé est très souvent couplé à un premier cycle de frittage naturel. En effet, les céramiques frittées sous vide peuvent conserver après traitement thermique de la porosité résiduelle. L'introduction d'un cycle de post-frittage HIP permet de consolider la pièce en favorisant l'élimination de la porosité fermée et, par conséquent, conduit à améliorer les propriétés optiques du matériau [11, 12].

L'ensemble de ces travaux démontre la nécessité d'un contrôle rigoureux des conditions d'élaboration des poudres initiales qui conditionnent leur réactivité lors du traitement ultérieur de frittage. En particulier, une alternative au simple mélange de poudres d'oxydes est fournie par la synthèse chimique de précurseurs d'oxydes par voie liquide. Ces précurseurs du YAG peuvent être obtenus par méthode sol-gel en utilisant des citrates [13–16] ou des alkoxydes d'yttrium et d'aluminium [17–19]. Toutefois, le frittage de ces produits n'a pas pu mener à des céramiques transparentes du fait de la présence de porosité et de phases secondaires résiduelles induites par les conditions de synthèse. Une équipe a pu produire du YAG transparent à partir de poudres obtenues par précipitation sans pour autant déterminer l'influence du



Fig. 1. Schéma du mélange d'oxydes.

Fig. 1. Schema of the mixture of oxides.

traitement thermique (cycle thermique, atmosphère...) des précurseurs sur les propriétés optiques des céramiques [20].

L'objectif de ce travail est double :

- dans une première partie, il s'agira de mettre en évidence le rôle bénéfique de la silice et du dopant (néodyme) sur le frittage flash du YAG ;
- dans une deuxième partie, la mise en œuvre des procédés non conventionnels de frittage (HIP et SPS) sera discutée au regard des propriétés optiques attendues.

Procédure expérimentale

Préparation des mélanges

Deux voies d'élaboration du YAG ont été étudiées lors de ce travail : la réaction en phase solide et la synthèse par voie chimique.

a) Réaction en phase solide

Deux nuances de composition chimique d'échantillons de YAG ont été élaborées : pure ou dopée au néodyme. Pour chaque nuance, une faible proportion de silice a été ajoutée comme aide au frittage. Plus particulièrement, quatre concentrations ont été envisagées dans cette étude : 0 % ; 0,05 % ; 0,1 % et 0,3 % massique de SiO_2 (pureté > 99,8 %, Alfa Aesar, $\varnothing_m \approx 10\text{ nm}$). Les mélanges sont réalisés à partir d'oxydes purs (voir Fig. 1).

Les poudres d'alumine (pureté > 99,99 %, Baikowsky, $\varnothing_m \approx 0,5\text{ }\mu\text{m}$) et d'yttrine (pureté > 99,99 %, $\varnothing_m \approx 0,8\text{ }\mu\text{m}$) sont mélangées dans les proportions stœchiométriques pour obtenir $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$. Dans le cas des échantillons dopés au néodyme, l'ajout de Nd_2O_3 (pureté > 99,99 %, Alfa Aesar, $\varnothing_m \approx 4\text{ }\mu\text{m}$) conduit à l'obtention du composé $\text{Nd}_{0,06}\text{Y}_{2,94}\text{Al}_5\text{O}_{12}$. Le mélange ainsi

réalisé est agité en milieu aqueux en présence de billes de zircone.

Lors du traitement de frittage flash, les échantillons pulvérulents sont mis en forme par pressage uniaxial pendant le traitement thermique.

b) Voie chimique : lyophilisation [12]

La lyophilisation consiste en l'élimination de l'eau par sublimation d'une solution congelée. Cette technique est très souple. Elle permet de produire facilement des phases céramiques de composition chimique très variable si les sels solubles appropriés existent. Dans notre cas, le lactate d'aluminium $((\text{CH}_3\text{CH}(\text{OH})\text{COO})_3\text{Al}$, pureté > 95 %, Merck), l'acétate d'yttrium $((\text{CH}_3\text{CO}_2)_3\text{Y}$, pureté > 99,9 %, Chempur) et l'acétate de néodyme $((\text{CH}_3\text{CO}_2)_3\text{Nd}$, pureté > 99,9 %, Alfa Aesar) sont dissous dans de l'eau déminéralisée bouillante. De l'acide acétique de grande pureté (pureté > 99,8 % Normapur, Prolabo) a été introduit pour maintenir le pH de la solution en dessous de 4 et afin d'éviter la précipitation du lactate d'yttrium $(\text{CH}_3\text{CH}(\text{OH})\text{COO})_3\text{Y}$. Les concentrations en cations ont été calculées pour obtenir le composé $\text{Nd}_{0,03}\text{Y}_{2,97}\text{Al}_5\text{O}_{12}$. De la silice colloïdale (pureté > 99,8 %, Alfa Aesar) a été ajoutée comme précédemment jusqu'à des teneurs de 3000 ppm.

La solution portée à ébullition a été pulvérisée dans l'azote liquide. Puis, la masse congelée est introduite dans un lyophilisateur (type ALPHA 2-4, Christ). L'élimination de l'eau par sublimation sous vide ($P = 0,035$ mbar) est réalisée en maintenant la température du produit à -20°C pendant 20 heures. À la fin du processus, le produit est chauffé à 50°C pour éliminer l'eau adsorbée et entraîner la formation d'un produit pulvérulent.

Traitements de frittage

a) Frittage SPS (Spark Plasma Sintering)

Le procédé SPS repose sur l'introduction de poudres d'oxydes dans un moule en graphite soumis à une pression uniaxiale lors du traitement thermique. La différence majeure de ce procédé par rapport aux méthodes conventionnelles réside dans le fait que la source de chaleur n'est pas externe mais qu'un courant électrique (continu – continu pulsé ou alternatif) appliqué via des électrodes passe à travers le moule de la presse et, également lorsque celui-ci est conducteur, à travers l'échantillon (voir Fig. 2). Le moule et l'ensemble des pistons agissent en tant que

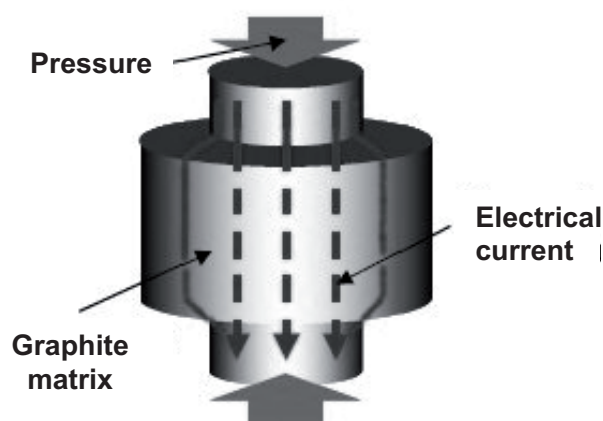


Fig. 2. Procédé de frittage-flash.

Fig. 2. Schema of the Spark plasma sintering device.

source de chauffage ce qui permet d'obtenir des vitesses de montée en température élevées (jusqu'à $600^\circ\text{C}/\text{min}$ lorsque l'échantillon est conducteur).

Les échantillons ont été frittés sous vide à l'aide d'un appareil Sumitomo SPS 2080 (plateforme CNRS PNF², Université Paul Sabatier, INP Toulouse), dans une matrice en graphite de diamètre interne 20 mm, à l'aide d'un piston et d'un contre-piston eux aussi en graphite. Le moule est chemisé à l'intérieur par une feuille de papier graphite (PAPYEXTM) afin de rendre plus aisé le démoulage. Ce papier est préalablement recouvert d'une fine couche de nitrure de bore afin d'éviter toute pollution des échantillons par le carbone. L'application des impulsions de courant se fait aux bornes des deux pistons, par séries de 12, avec un temps mort correspondant à 2 impulsions. L'évolution de la température est suivie à l'aide d'un pyromètre digital pointant sur la matrice. Le déplacement du piston est enregistré ce qui permet d'avoir accès au retrait subi par le compact granulaire lors du traitement thermique.

Les poudres ont été frittées sous vide contrôlé en utilisant un cycle thermique constitué d'une montée en température avec une vitesse de $100^\circ\text{C}/\text{min}$ jusqu'à une température variant entre 1050°C et 1400°C , suivi d'un maintien à la température choisie pendant un temps de 0,3 ou 10 minutes. La pression uniaxiale appliquée est de 50 MPa.

Les frittés ont été ensuite polis, jusqu'à l'obtention de l'état de surface « poli miroir », en vue d'une attaque thermique sous air. Les microstructures ont été observées au microscope électronique à balayage (MEB de type Philips XL30).

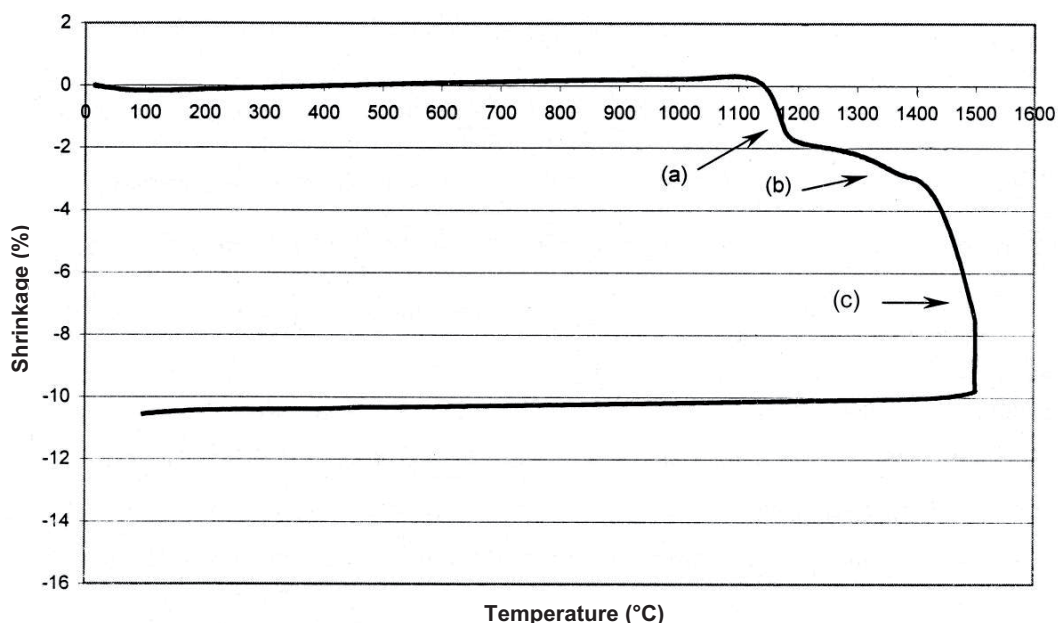


Fig. 3. Courbe dilatométrique d'un échantillon de YAG:Nd (2 at. %) contenant 0,3 % massique de SiO₂.

Fig. 3. Dilatometric analysis of a Nd: YAG sample (2 at. % of Nd₂O₃) including 0.3 wt.% SiO₂.

c) Frittage HIP

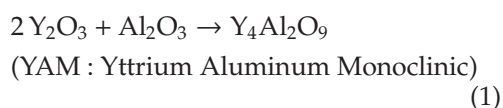
La poudre obtenue par le procédé de lyophilisation est traitée sous air à plus de 1000 °C afin d'obtenir un échantillon pulvérulent de YAG dopé néodyme dont la taille des particules élémentaires est voisine en moyenne de 50 nm. Après broyage à l'aide de billes, la poudre est pressée uniaxialement à froid sous une pression de 300 MPa, puis frittée sous vide (10⁻³ Pa) à 1700 °C pendant 3 heures.

Les frittés ont été traités par compaction isostatique à chaud : ils sont déposés dans un creuset en alumine placé dans un creuset en graphite. Ces échantillons subissent un cycle thermique constitué d'une montée de 10 °C/min jusqu'à 1700 °C (sous une pression d'argon de 160 MPa). Le temps de maintien isotherme est de l'ordre de 90 minutes. Le refroidissement des échantillons est contrôlé avec une vitesse de descente de 10 °C/min.

Résultats et discussion

Frittage naturel

Lors du frittage naturel du YAG, plusieurs phases cristallines sont formées successivement avant de donner Y₃Al₅O₁₂ [21]. Cet enchaînement réactionnel peut être décrit sous la forme :



(YAP : Yttrium Aluminum Perovskite) (2)



(YAG : Yttrium Aluminum Garnet). (3)

La caractérisation par diffraction des rayons X à température ambiante, d'échantillons frittés entre 1200 °C et 1700 °C puis trempés, révèle la prédominance de la phase YAP à partir de 1200 °C. La phase YAG n'est pas détectée à cette température. Pour des températures de frittage supérieures à 1400 °C, les échantillons ne sont plus formés que de YAG.

La figure 3 montre la courbe de retrait d'un échantillon de YAG:Nd (2 %at.) comportant 0,3 % massique de SiO₂, lors d'une montée en température avec une vitesse de 5 °C/min jusqu'à 1500 °C. Un maintien de 10 minutes est réalisé à cette température.

Le thermogramme révèle la présence de trois étapes notées (a) pour celle entre 1100 °C et 1200 °C, (b) pour la seconde entre 1300 °C et 1420 °C, et (c) entre 1420 °C et 1500 °C.

En corrélant avec les résultats obtenus par diffraction des rayons X, on peut conclure que la première étape correspond aux réactions (1) et (2). Le retrait observé lors de cette étape est essentiellement dû au changement des paramètres de maille entre la structure monoclinique (YAM) et la structure pérovskite (YAP) plus dense (de 3,98 à

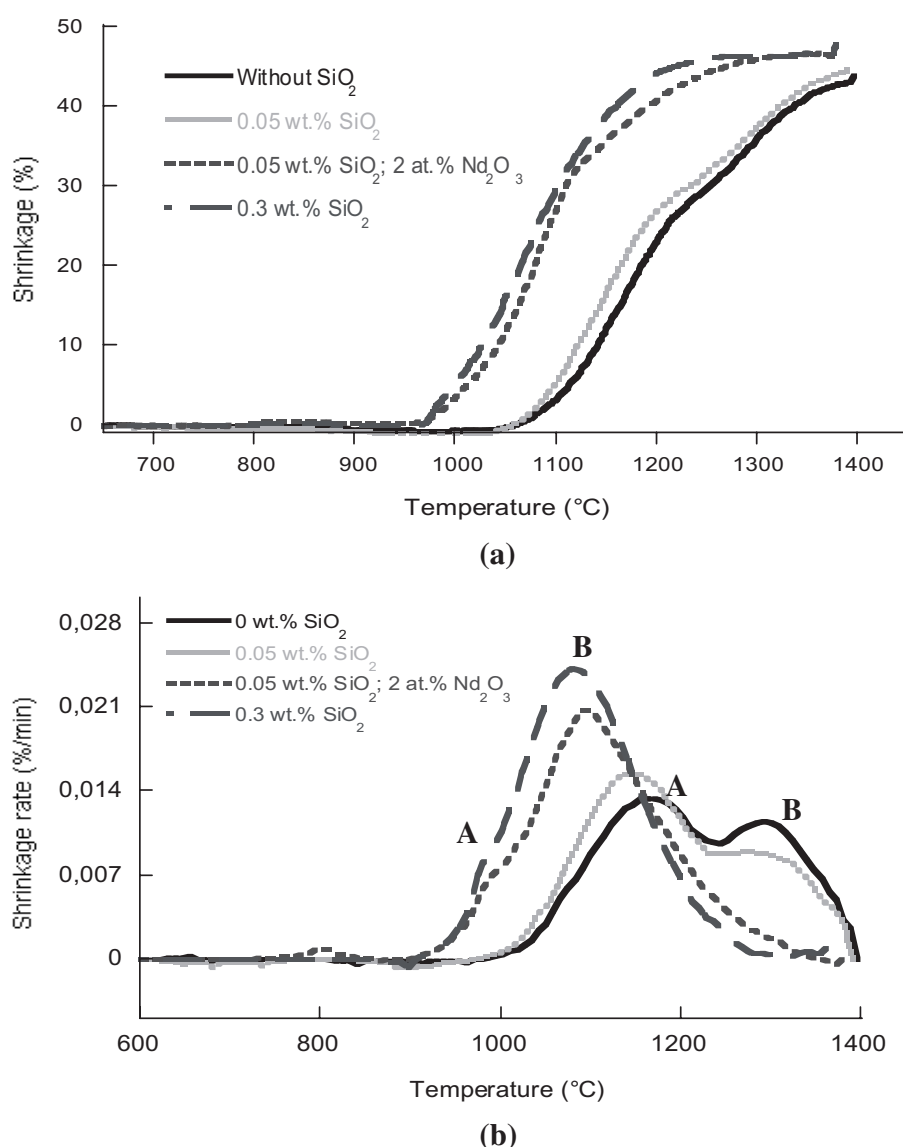


Fig. 4. Évolution du retrait (a) et de la vitesse de retrait (b) en fonction de la concentration en silice et en oxyde de néodyme pour les échantillons de YAG.

Fig. 4. Evolution of the shrinkage (a) and the rate of shrinkage (b) as function of silica and neodymium oxide contents for YAG samples.

5,35 g/cm³). La seconde étape correspond à la formation du YAG (réaction (3)), et la troisième au frittage de cette phase. Le taux de retrait enregistré après retour à la température ambiante est d'environ 10 %.

Frittage non conventionnel

Frittage SPS

La figure 4 présente les courbes de retrait et leurs dérivées, lors du frittage flash d'échantillons de YAG, en fonction du taux de silice ajouté et de la présence d'oxyde de néodyme.

On constate sur ce graphique que les températures de frittage sont nettement inférieures à celles relevées lors du frittage naturel. Ainsi, le recours simultané au procédé SPS et à un ajout de type SiO_2 permet de renforcer l'aptitude au frittage réactif des poudres initiales.

Par exemple, pour un échantillon contenant 0,3 % massique de SiO_2 , le retrait devient significatif dès 970 °C, soit 130 °C en dessous de la température de début de frittage naturel. De plus, il semble que l'introduction de teneurs croissantes en silice favorise la cinétique de densification contrairement au cas du frittage naturel [22]. Sur

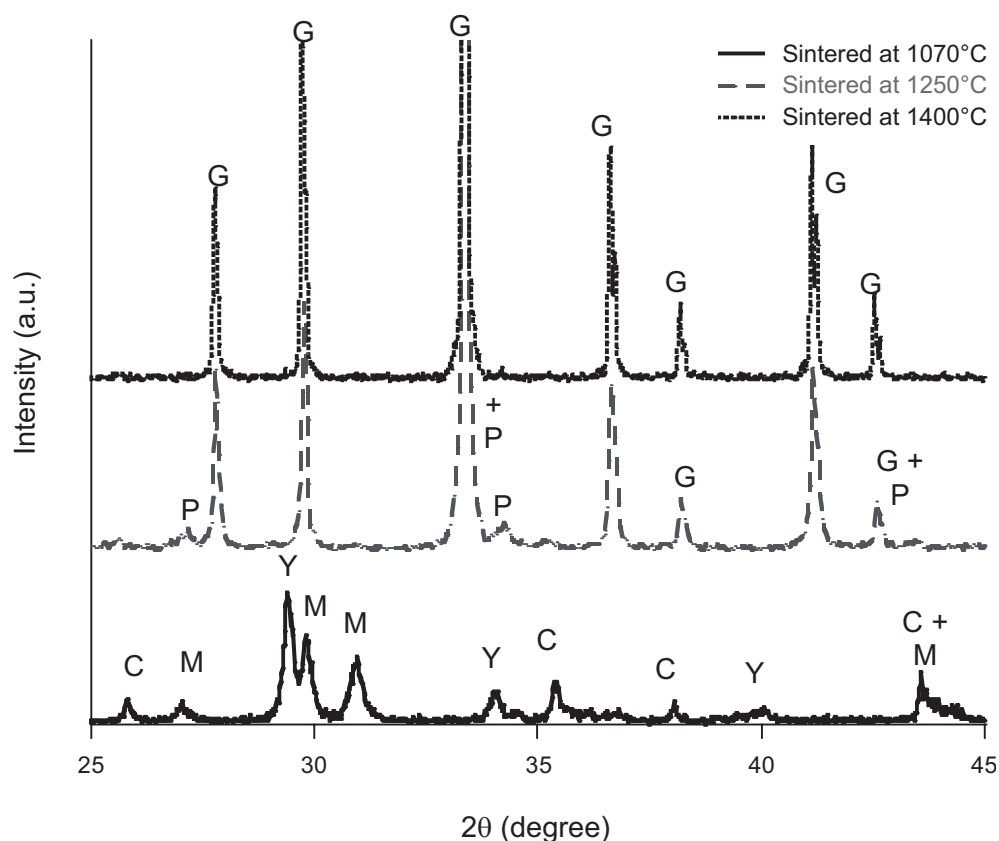


Fig. 5. Clichés de diffraction des rayons X en fonction de la température de frittage flash d'un mélange contenant 0,3 %m. de SiO_2 : (C) corindon, (G) YAG, (M) YAM, (P) YAP, (Y) oxyde d'yttrium.

Fig. 5. X-ray diffraction patterns for a mixture containing 0.3 wt.% de SiO_2 as function of the SPS temperature. The indexed phases are: (C) corundum, (G) YAG, (M) YAM, (P) YAP, (Y) yttrium oxide.

cette même figure, on peut remarquer pour une même concentration en silice que la présence de néodyme abaisse significativement la température du début de retrait. Cette tendance avait déjà été observée par Messing et al. dans le cas du frittage naturel du YAG [23].

L'analyse des courbes dérivées (Fig. 4b), permet de relever distinctement deux étapes de retrait matérialisées par les lettres A et B. Afin d'identifier ces étapes par rapport aux réactions ($\text{YAM} \rightarrow \text{YAP} \rightarrow \text{YAG}$) citées dans le cas du frittage naturel (« frittage naturel »), nous avons réalisé des traitements de frittage SPS jusqu'à différentes températures (1070, 1250 et 1400 °C).

Au regard de ces résultats, il est possible d'interpréter l'effet favorable de la silice sur la cinétique de formation de la phase YAG en prenant en considération l'apparition d'une phase fusible. Ce phénomène a déjà été mis en évidence lors d'essais de frittage naturel de la phase YAG à partir de mélanges d'oxydes réactifs de même composition [22]. En effet, la formation d'une phase liquide au cours du traitement de frittage SPS peut

être corrélée d'une part, à l'intervention d'un processus de réarrangement granulaire et, d'autre part, à une activation des processus de transport de matière par diffusion. Ces deux processus pourraient concourir à une plus grande réactivité des phases oxydes de départ.

Les analyses réalisées par diffraction des rayons X sur des échantillons comportant une même teneur de 0,3 % en masse de silice, sont présentées sur la figure 5. Cette figure nous renseigne sur la nature des phases formées après traitement SPS. A 1070 °C, après le premier retrait (accompagné du pic A), la phase monoclinique (YAM) est déjà formée, mais ni le YAP ni le YAG ne sont présents. À 1250 °C, après le second retrait (indexé par le pic B), on détecte la présence de la phase YAG ainsi que des traces de YAP. Puis, à 1400 °C, la seule phase détectable est le YAG.

En résumé, le pic de retrait (A) correspondrait à la transformation $\text{YAM} \rightarrow \text{YAP}$, tandis que celui indexé (B) serait associé à la transformation $\text{YAP} \rightarrow \text{YAG}$ ainsi qu'au frittage de la phase produite. On peut noter

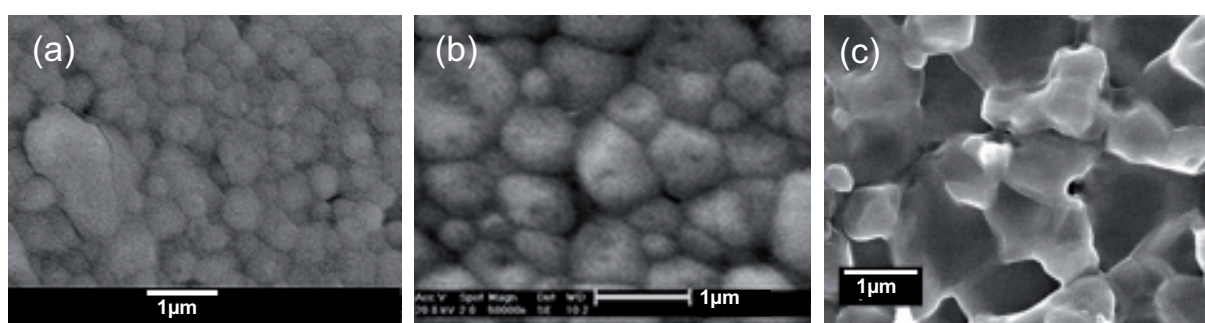


Fig. 6. Observations MEB (après recuit sous air) d'échantillons frittés par SPS à 1400 °C sans palier (puis recuit sous air à 1300 °C pendant 3 h) en fonction de la teneur en ajout de silice : (a) 0 % ; (b) 0,05 %m. ; (c) 0,3 %m.

Fig. 6. SEM observations of samples sintered by SPS at 1400 °C without stage (then annealing in air at 1300 °C during 3 h) as function of silica content: (a) 0 %; (b) 0.05 wt.%; (c) 0.3 wt. %.

Tableau 1. Taux de densification (avant recuit) des échantillons frittés par le procédé SPS : rôle de la teneur en silice (et en néodyme) (Figs. 4 et 6), et de la température de frittage pour une teneur en silice de 0,3 %m. (Figs. 5 et 7).

Table 1. Densification rate of samples sintered by SPS process: effect of silica content (and neodymium content) (Figs. 4 and 6), and effect of sintering temperature for a silica content of 0.3 wt.% (Figs. 5 and 7).

Teneur en silice (%m.)	0 %	0,05 %	0,05 % + 2 %at. of néodymium	0,3 %
Température de frittage (°C)				
1070				<80
1250				95,1
1400	98,7	98,1	100	100

que ces pics sont, d'une part, déplacés très nettement vers les basses températures en présence d'une teneur croissante en silice et, d'autre part, quasi indiscernables pour les concentrations massiques les plus importantes en SiO_2 .

Ces résultats mettent en évidence une nette activation en présence de silice des deux transformations de phase (associées aux réactions (2) et (3)) menant à la formation de la phase YAG. Cet effet se traduit aussi par le recouvrement des domaines d'existence en température des différentes phases (YAM, YAP, YAG).

La figure 6 montre l'évolution de la microstructure des échantillons après un traitement thermique par SPS sans palier à 1400 °C, en fonction de la teneur en ajout de silice. On constate que la taille des grains augmente très légèrement avec la teneur en silice sans que la distribution en taille soit à priori modifiée (voir Figs. 5a et 5b). En effet la taille moyenne des grains des échantillons frittés est à peine plus grande que la granulométrie moyenne du mélange initial (de l'ordre de 0,5 µm).

À partir du tableau 1 on remarque que l'ensemble des échantillons est totalement

dense après traitement à 1400 °C. La porosité que l'on peut observer sur les clichés MEB est due à la libération de carbone, piégé « initialement » dans l'échantillon, lors du recuit sous air (gravage thermique).

La figure 7 montre l'évolution de la microstructure des échantillons traités à différentes températures (1070, 1250 et 1400 °C) sans palier. Les différentes microstructures obtenues mettent en évidence la présence de grains de formes aciculaires dans le cas de l'échantillon fritté à 1250 °C. Les taux de densification de ces échantillons sont présentés dans le tableau 1.

Cette microstructure particulière se démarque de celles de forme équiaxe obtenues à plus basse température. Ce changement microstructural pourrait trouver son interprétation dans l'hypothèse de la formation d'une phase liquide lors du traitement thermique. Cette phase liquide recristallise au cours du refroidissement sous la forme de particules aciculaires et répondrait à une composition chimique proche de celle d'un eutectique dans le diagramme de phase $\text{Y}_2\text{O}_3 - \text{Al}_2\text{O}_3 - \text{SiO}_2$ [22].

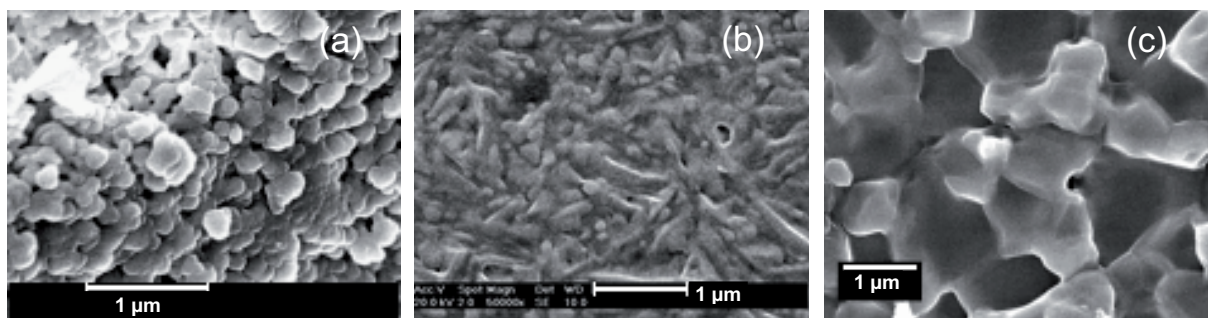


Fig. 7. Observations MEB d'échantillons frittés par SPS à différentes températures pour une teneur en silice de 0,3 %m. : (a) 1070 °C ; (b) 1250 °C ; (c) 1400 °C.

Fig. 7. SEM observations of samples sintered by SPS at several temperatures for a 0.3 wt.% silica content: (a) 1070 °C; (b) 1250 °C; (c) 1400 °C.

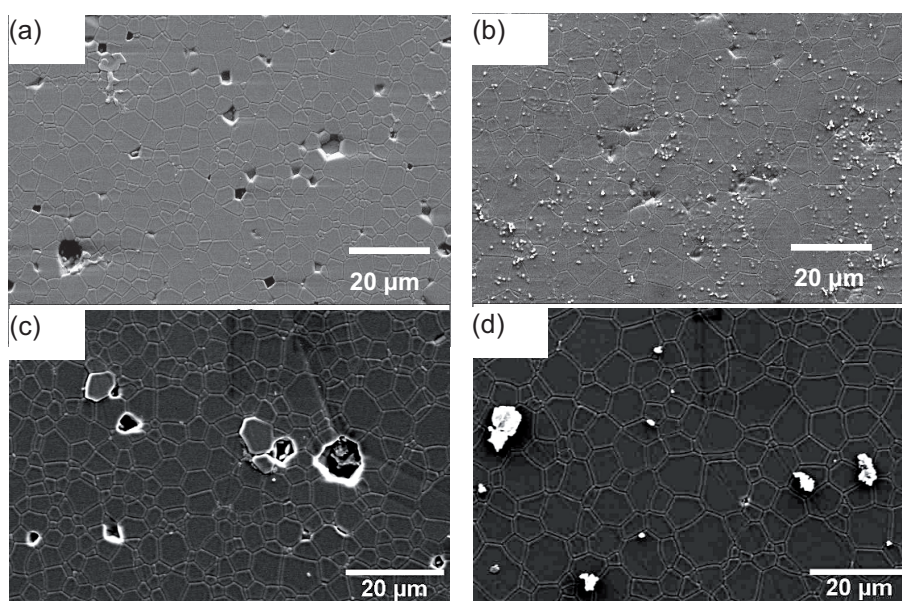


Fig. 8. Observations MEB d'échantillons obtenus à partir de poudre oxydée à : a) 1000 °C, b) 1200 °C ; et c) même échantillon qu'au « a » après post-frittage par HIP, d) même échantillon qu'au « b » après post-frittage par HIP.

Fig. 8. SEM observations of samples obtained from a powder treated at: a) 1000 °C, b) 1200 °C; and c) same sample than "a)" but after HIP post-treatment, d) same sample than "b)" but after HIP post-sintering.

Frittage HIP

Les microstructures des échantillons frittés sous vide pendant 3 h à 1700 °C et des mêmes échantillons post-frittés par compaction isostatique à chaud à 1700 °C pendant 90 minutes sous une pression d'argon de 160 MPa, sont portées sur la figure 8.

On peut observer l'effet de la température de calcination des précurseurs. Les céramiques obtenues à partir d'une poudre traitée à 1000 °C sont plus poreuses qu'à partir d'une poudre traitée à 1200 °C. Cette porosité est due à la volatilisation de résidus carbonés issus de la calcination des gels initiaux [12].

Dans ces conditions d'élaboration, nous constatons qu'un post-frittage HIP est indispensable pour obtenir une céramique sans porosité résiduelle. Dans tous les cas, le traitement HIP n'affecte pas la taille moyenne des grains pour les échantillons de YAG.

Sur la figure 9, deux échantillons de YAG:Nd (2 %at.) de 1,6 mm d'épaisseur et de diamètre proche de 15 mm, sont présentés. L'échantillon obtenu à partir d'une poudre traitée à 1200 °C montre à l'évidence une bonne transparence après post-frittage HIP.

Conclusion

Cette étude montre que les méthodes de frittage non conventionnelles peuvent s'avérer

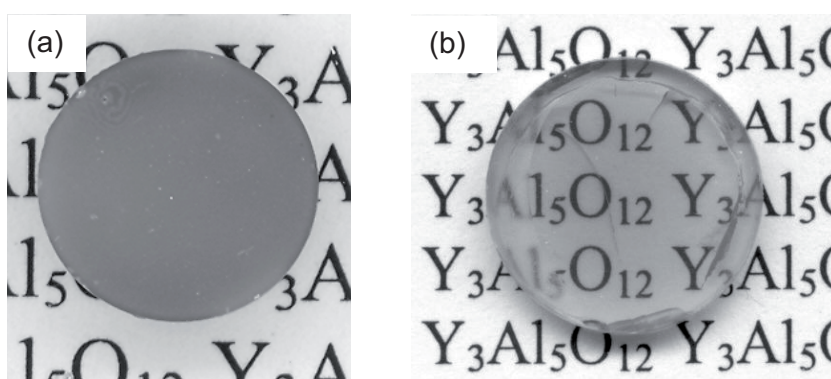


Fig. 9. Échantillons ayant subi le frittage et le post-frittage par HIP, réalisés à partir de poudres obtenues par le procédé de lyophilisation puis calcinées à : (a) 1000 °C, et (b) 1200 °C.

Fig. 9. Sintered and HIP post-treated samples, manufactured from powders obtained by freeze-drying process and then thermally treated at: (a) 1000 °C and (b) 1200 °C.

intéressantes pour s'affranchir de certaines contraintes relatives au frittage naturel.

Le frittage flash permet d'accélérer la cinétique de densification du YAG, inhibant ainsi probablement la croissance granulaire et, par conséquent, le grossissement de grains exagéré préjudiciable aux propriétés optiques. Cet effet se manifeste notamment par l'obtention de pièces translucides ou transparentes pour des traitements SPS de courte durée (environ 30 minutes).

Enfin, le frittage sous charge isostatique semble être un complément au frittage naturel (voire au traitement SPS) pour l'élimination de la porosité fermée résiduelle et ainsi pour l'obtention de pièces transparentes.

Références

- [1] J. Lu, K.I. Ueda, H. Yagi, T. Yanagitani, Y. Akiyama, A.A. Kaminskii, *J. Alloys Comp.* **341** (2002) 220–225
- [2] T. Feng, J. Shi, J. Chen, D. Jiang, *J. Mat. Res.* **20** (2005) 2322–2327
- [3] A. Ikesue, K. Kamata, K. Yoshida, *J. Am. Ceram. Soc.* **78** (1995) 2545–2547
- [4] I. Sakagushi, S. Hishita, H. Haneda, T. Yanagitani, *Mat. Sci. Eng.* **B33** (1995) L10–L12
- [5] Xia Li, Q. L. Jiyang Wang, Hong Liu, *Opt. Mater.*, in press
- [6] G. De With, *Philips J. Res.* **42** (1987) 119–130
- [7] J.R. Groza, S.H. Risbud, K. Yamazaki, *J. Mat. Res.* **7** (1992) 2643–2645
- [8] Y.J. Wu, R. Kimura, N. Uekawa, K. Takegawa, Y. Sasaki, *J. Appl. Phys.* **41** [Part 2, No. 2B] (2002) L219–L221
- [9] R. Chaim, J.Z. Shen, M. Nygren, *J. Mat. Res.* **19** (2004) 2527–2531
- [10] R. Chaim, R. Marder-Jaeckel, J.Z. Shen, *Mat. Sci. Eng. A* **429** (2006) 74–75
- [11] A. Ikesue, K. Kamata, *J. Am. Ceram. Soc.*, **79** (1996) 1927–1933
- [12] Y. Rabinovitch, C. Bogicevic, F. Karolak, D. Tétard, H. Dammak, *J. Mater. Proc. Technol.*, to be published
- [13] P. Courty, H. Ajot, C. Marcilly, B. Delmon, *Powder Technol.* **7** (1973) 21–38
- [14] P. Vaqueiro, M.A. Lopez-Quintela, *J. Mat. Chem.* **8** (1998) 161–163
- [15] M.K. Cinibulk, *J. Am. Ceram. Soc.* **83** (2000) 1276–1278
- [16] S. Roy, L. Wang, W. Sigmund, F. Aldinger, *Mat. Lett.* **39** (1999) 138–141
- [17] R. Manalart, M.N. Rahaman, *J. Mat. Sci.* **31** (1996) 3453–3458
- [18] G. Gowda, *J. Mat. Sci. Lett.* **5** (1986) 1029–1032
- [19] S.K. Ruan, J.G. Zhou, A.M. Zhong, J.F. Duan, X.B. Yang, M.Z. Su, *J. Alloys Comp.* **275-277** (1998) 72–75
- [20] I. Matsubara, M. Paranthaman, S.W. Allison, M.R. Cates, D.L. Beshears, D.E. Holcomb, *Mat. Res. Bull.* **35** (2000) 217–224
- [21] X.Y. Chen, L. Yang, R.E. Cook, S. Skanthakumar, D. Shi, G.K. Liu, *Inst. Phys. Publ., Nanotechnol.* **14** (2003) 670–674
- [22] C. Sallé, A. Maître, J.F. Baumard, Y. Rabinovitch, A First Approach of Silica Effect on the Sintering of Nd: YAG, *Opt. Rev.*, to be published
- [23] S.H. Lee, S. Kochawattana, G.L. Messing, J.Q. Dumm, G. Quarles, V. Castillo, *J. Am. Ceram. Soc.* **89** (2006) 1945–1950